

(43)公開日 平成12年10月3日(2000.10.3)

| (51) Int.Cl. <sup>7</sup>           | 識別記号 | F I           | テマコード <sup>*</sup> (参考) |
|-------------------------------------|------|---------------|-------------------------|
| C 0 8 G 59/50                       |      | C 0 8 G 59/50 | 4 J 0 0 2               |
| 59/24                               |      | 59/24         | 4 J 0 3 6               |
| C 0 8 K 3/00                        |      | C 0 8 K 3/00  | 4 M 1 0 9               |
| C 0 8 L 63/00                       |      | C 0 8 L 63/00 | C                       |
| H 0 1 L 23/29                       |      | H 0 1 L 23/30 | R                       |
| 審査請求 未請求 請求項の数 1 O L (全 5 頁) 最終頁に続く |      |               |                         |

|          |                       |         |   |
|----------|-----------------------|---------|---|
| (21)出願番号 | 特願平11-74971           | (71)出願人 | 000002141<br>住友ベークライト株式会社<br>東京都品川区東品川2丁目5番8号 |
| (22)出願日  | 平成11年3月19日(1999.3.19) | (72)発明者 | 深瀬 利光<br>東京都品川区東品川2丁目5番8号 住友<br>ベークライト株式会社内   |

最終頁に続く

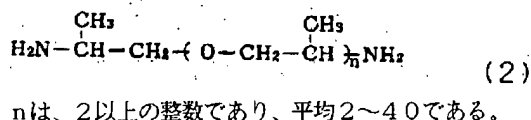
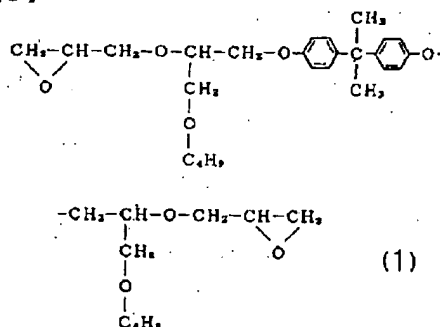
(54)【発明の名称】 液状エポキシ樹脂組成物

(57) 【要約】

【課題】 高密着性で且つ可撓性と高温の長期使用後でも初期の可撓性及び密着性の保持に優れる二液型エポキシ樹脂組成物を提供する。

【解決手段】 必須成分が、(A)式1に示されるエポキシ樹脂、(B)式2に示される硬化剤、(C)硬化促進剤及び、(D)-無機充填材からなることを特徴とする可撓性液状エポキシ樹脂組成物。

【化1】

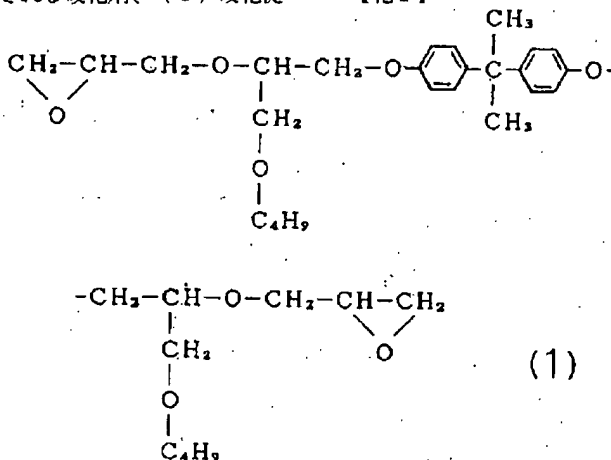


$n$ は、2以上の整数であり、平均2~40である。

【化2】

\* 進剤及び(D)無機充填材からなることを特徴とする可撓性液状エポキシ樹脂組成物。

【化1】


$$\text{H}_2\text{N}-\overset{\text{CH}_3}{\underset{|}{\text{CH}}}-\text{CH}_2-(\text{O}-\overset{\text{CH}_3}{\underset{|}{\text{CH}}}-\text{CH}_2)_n\text{NH}_2 \quad (2)$$

※【0004】可撓性の良好な注型用樹脂としては、従来からシリコン樹脂組成物が用いられていた。シリコン樹脂組成物は、有機基を持つケイ素がシロキサン結合（ $\text{Si-O-Si}$ ）しているポリマー（シリコン樹脂）を単独または使用目的に応じて、充填剤、加硫剤、硬化剤や他の添加剤等を併用して構成される。一般に、シリコン樹脂組成物は可撓性に優れるが、吸湿による加水分解を受け易く、次第にケース材やプリント基板等との密着性不良や絶縁性不良を起こす欠点がある。シリコン樹脂の密着性が悪いという性質はシリコン樹脂固有の問題であり、経時変化により更に悪化する。

【0005】従って、最近ではケース材やプリント基板等の密着性に優れ且つ吸湿性の少ないエポキシ樹脂組成物への要望が高まっている。しかし、エポキシ樹脂組成物は基本的には固くて脆い材料であり、そのために可撓性を付与する試みは種々行われて来たが、可撓性と高温下の長期使用でも硬さが殆ど変化しない耐熱劣化性とを両立する事が困難であった。

【0006】例えばセラミックコンデンサ部品の注型材料において、ケース材との高密着性と125℃の高温の長期使用後でも初期の可撓性を維持する耐熱劣化性の要求に対し、シリコン樹脂組成物では前者が不十分であり、エポキシ樹脂組成物では後者の点で難点があり、何れも信頼性低下を招く。これは、従来両方の特長を満足する注型材がないことに起因するものである。

【0007】そこで、エポキシ樹脂の高密着性を損なわずに、可撓性が優れ、耐熱劣化性の良好なエポキシ樹脂組成物が種々検討されている。従来のエポキシ樹脂の可

【0003】このように、高密度実装化の増大に伴い、その機械的・熱的ストレスを吸収して破壊や特性変化を防止する低応力注型が強く要求され、可撓性であり、かつケース材又はプリント基板等の部材との密着性の優れた低応力注型材料が必要になってきている。

撓性付与方法は下記のような考え方のもとに検討されていた。

即ち、①架橋点間分子量の調節（高分子量素材の使用、架橋時に分子鎖延長）

②軟質分子骨格の導入（エラストマー変性、長鎖状素材の使用）

③内部可塑化（可塑化素材・単官能素材の使用、主剤／硬化剤比調整）

④異種構造、素材の導入（海島構造・相互侵入編み目構造等の導入）

等の対策であり、特に、①、③は注型材料に好適であると言われている。

【0008】

【発明が解決しようとする課題】本発明者らは、可撓性と可撓性の耐熱劣化性に優れる二液型エポキシ樹脂注型材料として、③の内部可塑性では耐熱劣化性が不十分で\*

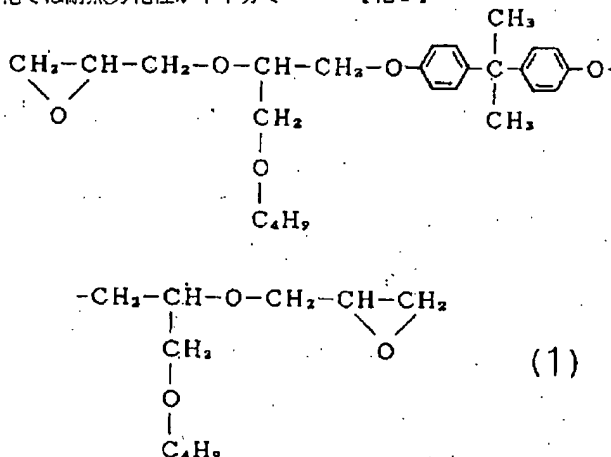
\* あることを見だし、①の架橋点間分子量の調節を講じることにより、高密着性を具備しつつ、可撓性と可撓性の耐熱劣化性を向上させる事を見出したのである。即ち、本発明は、(A)式1に示されるエポキシ樹脂と(B)式2に示される硬化剤を使用することによりその架橋点間分子量の調節を行うものであり、高密着性で、且つ可撓性と可撓性の耐熱劣化性に優れる二液型エポキシ樹脂組成物を提供するものである。

【0009】

10 【課題を解決するための手段】本発明は、必須成分が、  
 (A) 式1に示されるエポキシ樹脂、(B) 式2に示される硬化剤、  
 (C) 硬化促進剤及び(D) 無機充填材からなることを特徴とする可撓性液状エポキシ樹脂組成物である。

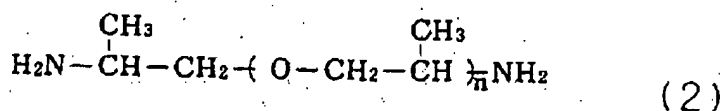
【0010】

【化1】



【0011】

※ ※【化2】



nは、2以上の整数であり、平均2～40である。

【0-0-1-2】本発明において用いられるエポキシ樹脂は、(A)式1に示されるエポキシ樹脂を必須成分として含有する。一方、硬化剤は、(B)式2に示される脂肪族アミンを必須成分として含有する。硬化剤は、上記式2において、 $n=2$ 未満の場合は、硬化後架橋点間の分子鎖長が短いため、架橋密度が高く可撓性を損なう。一方、 $n=40$ を超える場合は、柔らか過ぎて形状保持に難点がある。

【００１３】本発明において使用する式１に示されるエポキシ樹脂及び式２に示される脂肪族アミンは、ともに官能基である２個のエポキシ基あるいはアミノ基の間に比較的長い非反応性の安定な鎖を有しており、これが硬化後架橋点間の分子鎖長を長くしており、可撓性及び可撓性の耐熱劣化性を優れたものとしている。（Ａ）成分★５０

★と(B)成分との配合割合は、当量比で0.9～1.1が好ましい。この範囲より大きくても小さくても一方の成分が過剰となり、硬化後の諸特性、特に機械強度が低下するようになる。エポキシ樹脂として式1のもの以外を使用する場合、硬化剤として式2のもの以外を使用する場合も同様である。

【0014】本発明に用いられる硬化促進剤としては、3級アミンが挙げられる。例えば、トリスアミノメチルフェノール、ベンジルジメチルアミン、イミダゾール化合物等であり、必要に応じて併用する。本発明に用いられる無機充填材は、特に制限するものではないが、例えば、水酸化アルミニウム、水酸化マグネシウム等が好ましい。

【0015】以上のように、本発明は、エポキシ樹脂、硬化剤、硬化促進剤及び無機充填材を必須成分とする二

液型エポキシ樹脂組成物であるが、必要に応じて主剤（エポキシ樹脂）又は硬化剤に、カップリング剤、着色剤、チキソ付与剤等を配合することができる。

【0016】

【実施例】以下、実施例と比較例により本発明を説明す\*

\* 表1は実施例を、表2は比較例を示す。上欄に示す配合にて、試験片を作成し（硬化条件：120℃×60分）、下欄に示す特性を測定した。

【0017】

【表1】

|                        |              | 実施例1     | 実施例2     | 比較例1       | 比較例2       | 比較例3     |
|------------------------|--------------|----------|----------|------------|------------|----------|
| エポキシ樹脂A                |              | 100      | 100      | 100        | —          | —        |
| エポキシ樹脂B                |              | —        | —        | —          | 100        | —        |
| シリコーン樹脂主剤              |              | —        | —        | —          | —          | 100      |
| 硬化剤A1                  |              | 32       | 22       | —          | 20         | —        |
| 硬化剤A2                  |              | —        | 14       | —          | —          | —        |
| 硬化剤B                   |              | —        | —        | 100        | —          | —        |
| 硬化促進剤                  |              | —        | 10       | —          | —          | —        |
| シリコーン樹脂硬化剤             |              | —        | —        | —          | —          | 100      |
| 水酸化アルミニウム              |              | 100      | 100      | 100        | 100        | —        |
| デュロメータ硬さ<br>(タイプA)     | 初期値<br>1000μ | 70<br>74 | 73<br>76 | 75<br>>100 | 72<br>>100 | 70<br>72 |
| プリント基板<br>密着性 (kgf/cm) | 初期値<br>1000μ | 51<br>36 | 46<br>33 | 45<br>28   | 48<br>35   | 28<br>0  |

【0018】（表の説明）

エポキシ樹脂A：式1のエポキシ樹脂（エポキシ当量約320）

エポキシ樹脂B：ビスフェノールA型エポキシ樹脂（エポキシ当量約510、商品名：旭電化工業（株）製、EP-4005）

シリコーン樹脂：二液型シリコーン樹脂（樹脂と硬化剤、商品名：信越化学工業（株）製、KE1204）

硬化剤A1：式2の脂肪族アミン（式2において、nの平均値=6）

硬化剤A2：式2の脂肪族アミン（式2において、nの平均値=33）

硬化剤B：ポリアミドアミン（商品名：富士化成工業（株）製、トーマイド#280-B）

硬化促進剤：トリスアミノメチルフェノール

【0019】（測定方法）

1. デュロメータ硬さ：硬化物を、125℃×1000※

※HRで処理後評価。測定は、JIS K 7215（タイプA）試験法に準拠した。

2. プリント基板密着性：被着体はエポキシ樹脂銅張積層板とし、引張り剪断接着強さ測定用試験片を作成し、初期密着性を測定した。その後温度85℃、湿度85%で、1000時間処理し密着性を測定した。測定は、JIS C 2015試験法に準拠した。

【0020】

【発明の効果】本発明の液状エポキシ樹脂組成物は、ケース材やプリント基板等の部材との密着性に優れ、可撓性及び可撓性の耐熱劣化性が良好である。例えば、セラミックコンデンサ部品のケースポッティング或いは半導体や集積回路用素子をプリント基板上に搭載したものの一体注型において、高温（例えば、125℃）の長期使用後において、初期の可撓性及び部材との密着性を保持している。

フロントページの続き

(51)Int. Cl. 7

H01L 23/31

識別記号

FI

テーマコード（参考）

Fターム(参考) 4J002 CD051 CH052 DE078 DE148  
EN027 EN107 EN126 EU117  
FD018 FD142 FD146 FD157  
GJ02 GQ00  
4J036 AB01 AB09 DA05 DC05 DC14  
DC41 FA01 JA07  
4M109 AA01 BA04 CA02 CA05 EA02  
EB02 EB04 EB06 EB07 EB08  
EB12 EB18 EC04 EC09

DERWENT-ACC-NO: 2001-171907

DERWENT-WEEK: 200122

COPYRIGHT 1999 DERWENT INFORMATION LTD

TITLE: Flexible liquid epoxy resin  
composition used for case  
potting or monoblock casting of  
electronic parts or  
semiconductor devices comprises an  
epoxy resin, a curing  
agent, an accelerator, and an  
inorganic filler

PATENT-ASSIGNEE: SUMITOMO BAKELITE CO LTD[SUMB]

PRIORITY-DATA: 1999JP-0074971 (March 19, 1999)

PATENT-FAMILY:

| PUB-NO          | PAGES       | PUB-DATE        |     |
|-----------------|-------------|-----------------|-----|
| LANGUAGE        |             | MAIN-IPC        |     |
| JP 2000273149 A |             | October 3, 2000 | N/A |
| 005             | C08G 059/50 |                 |     |

APPLICATION-DATA:

| PUB-NO         | APPL-DESCRIPTOR | APPL-NO |
|----------------|-----------------|---------|
| APPL-DATE      |                 |         |
| JP2000273149A  | N/A             |         |
| 1999JP-0074971 | March 19, 1999  |         |

INT-CL (IPC): C08G059/24, C08G059/50 , C08K003/00 ,  
C08L063/00 ,  
H01L023/29 , H01L023/31

---

ABSTRACTED-PUB-NO: JP2000273149A

BASIC-ABSTRACT:

NOVELTY - A flexible liquid epoxy resin composition,  
comprises (A) an epoxy  
resin, (B) a curing agent, (C) an accelerator, and (D) an  
inorganic filler.

DETAILED DESCRIPTION - The epoxy resin is represented by

formula (I) and the  
curing agent is represented by formula (II).

n = an integer of 2 or more, which is 2 - 40 on average.

USE - The flexible liquid epoxy resin composition is useful  
for case potting or  
monoblock casting of electronic parts or semiconductor  
devices.

ADVANTAGE - The flexible liquid epoxy resin composition has  
excellent adhesion  
with the case material or the print circuit board etc, and  
shows good  
flexibility and heat degradation resistance. When it is  
used for case potting  
of ceramic condenser devices or monoblock casting of  
semiconductor devices and  
integrated circuit (IC) elements mounted on a printed  
circuit board, the  
initial flexibility and the adhesion with the member can be  
maintained at a  
high level after it is used at an elevated temperature (as  
high as 125 deg. C,  
for example) for a long period.

CHOSEN-DRAWING: Dwg.0/0

TITLE-TERMS: FLEXIBLE LIQUID EPOXY RESIN COMPOSITION CASE  
POTTING MONOBLOC CAST  
ELECTRONIC PART SEMICONDUCTOR DEVICE COMPRISE  
EPOXY RESIN CURE  
AGENT ACCELERATE INORGANIC FILL

DERWENT-CLASS: A21 A85 G02 L03 U11

CPI-CODES: A05-A03; A08-D01; A08-D03; A08-R01; A12-E04;  
A12-E07C; G02-A05B;  
L04-C21;

EPI-CODES: U11-A07; U11-E02A1;

ENHANCED-POLYMER-INDEXING:

Polymer Index [1.1]

018 ; G1570\*R G1558 D01 D11 D10 D23 D22 D31 D42 D50 D69  
D73 D83  
F47 7A ; H0011\*R ; P1898\*R P0464 D01 D10 D11 D18 D19  
D22 D42 D76

F34 F47 ; M9999 M2200 ; S9999 S1376  
 Polymer Index [1.2]  
 018 ; ND04 ; B9999 B4035 B3930 B3838 B3747 ; Q9999  
 Q7523 ; Q9999  
 Q7330\*R ; Q9999 Q7476 Q7330 ; B9999 B4682 B4568 ; Q9999  
 Q7363 Q7330  
 ; K9449 ; B9999 B5301 B5298 B5276  
 Polymer Index [1.3]  
 018 ; D01 D11 D10 D50 D89 D92 D93 F09 F07 ; A999 A157\*R  
 Polymer Index [1.4]  
 018 ; A999 A146  
 Polymer Index [1.5]  
 018 ; D00 ; A999 A237  
 Polymer Index [2.1]  
 018 ; P8015 P0975 P0964 D01 D10 D11 D50 D83 F34 ; M9999  
 M2153\*R  
 ; M9999 M2039 ; A999 A157\*R ; A999 A782  
 Polymer Index [2.2]  
 018 ; B9999 B5094 B4977 B4740

SECONDARY-ACC-NO:

CPI Secondary Accession Numbers: C2001-051588  
 Non-CPI Secondary Accession Numbers: N2001-124257